



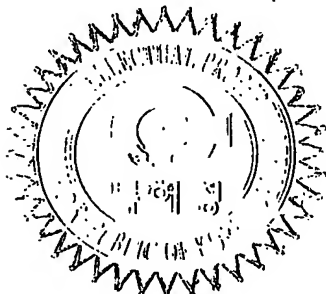
별첨 사본은 아래 출원의 원본과 동일함을 증명함.

This is to certify that the following application annexed hereto is a true copy from the records of the Korean Intellectual Property Office.

출원 번호 : 10-2003-0047458
Application Number

출원 년 월 일 : 2003년 07월 11일
Date of Application JUL 11, 2003

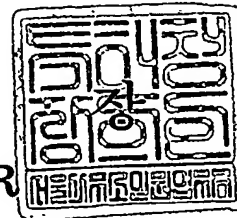
출원인 : (주)아이블포토닉스
Applicant(s) IBULE PHOTONICS



2003 년 08 월 07 일

특 허 청

COMMISSIONER



**PRIORITY
DOCUMENT**

SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)



1020030047458

출력 일자: 2003/8/7

【서지사항】

【서류명】	서지사항 보정서
【수신처】	특허청장
【제출일자】	2003.07.29
【제출인】	
【명칭】	(주)아이블포토닉스
【출원인코드】	1-2000-049710-5
【사건과의 관계】	출원인
【대리인】	
【성명】	정종옥
【대리인코드】	9-2001-000008-4
【포괄위임등록번호】	2001-043759-4
【대리인】	
【성명】	조담
【대리인코드】	9-1998-000546-2
【포괄위임등록번호】	2001-043757-0
【사건의 표시】	
【출원번호】	10-2003-0047458
【출원일자】	2003.07.11
【심사청구일자】	2003.07.11
【발명의 명칭】	강유전체 세라믹 화합물, 그 단결정 및 각각의 제조 방법
【제출원인】	
【접수번호】	1-1-2003-0254180-30
【접수일자】	2003.07.11
【보정할 서류】	특허출원서
【보정할 사항】	
【보정대상항목】	발명자
【보정방법】	정정
【보정내용】	
【발명자】	
【성명의 국문표기】	이상구
【성명의 영문표기】	LEE, SANG G00
【주민등록번호】	640505-1357441



【우편번호】	429-450
【주소】	경기도 시흥시 정왕동 1844 주공아파트 508동 305호
【국적】	KR
【발명자】	
【성명의 국문표기】	김민찬
【성명의 영문표기】	KIM,MIN CHAN
【주민등록번호】	651114-1953126
【우편번호】	690-012
【주소】	제주도 제주시 일도2동 113-6 일도우성아파트 204-502
【국적】	KR
【발명자】	
【성명의 국문표기】	최병주
【성명의 영문표기】	CHOI,BYUNG JU
【주민등록번호】	681001-1450911
【우편번호】	406-110
【주소】	인천광역시 연수구 연수동 582-2 연수2차 109동 401 호
【국적】	KR
【발명자】	
【성명의 국문표기】	신민철
【성명의 영문표기】	SHIN,MIN CHUL
【주민등록번호】	750909-1221417
【우편번호】	138-170
【주소】	서울특별시 송파구 송파동 39-17(8/8)
【국적】	KR
【발명자】	
【성명의 국문표기】	유수한
【성명의 영문표기】	YU,SU HAN
【주민등록번호】	670120-1025411
【우편번호】	405-850
【주소】	인천광역시 남동구 논현동 564-1
【국적】	KR



1020030047458

출력 일자: 2003/8/7

【취지】

특허법시행규칙 제13조·실용신안법시행규칙 제8조의 규정
에 의하여 위와 같 이 제출합니다. 대리인
정종욱 (인) 대리인
조담 (인)

【수수료】

【보정료】

0 원

【기타 수수료】

원

【합계】

0 원

【서지사항】

【서류명】	특허출원서
【권리구분】	특허
【수신처】	특허청장
【제출일자】	2003.07.11
【발명의 명칭】	강유전체 세라믹 화합물, 그 단결정 및 각각의 제조 방법
【발명의 영문명칭】	Ferroelectric ceramic compound and single crystal material made therefrom and each manufacturing method thereof
【출원인】	
【명칭】	(주)아이블포토닉스
【출원인코드】	1-2000-049710-5
【대리인】	
【성명】	정종옥
【대리인코드】	9-2001-000008-4
【포괄위임등록번호】	2001-043759-4
【대리인】	
【성명】	조담
【대리인코드】	9-1998-000546-2
【포괄위임등록번호】	2001-043757-0
【발명자】	
【성명의 국문표기】	이상구
【성명의 영문표기】	LEE, SANG KOO
【주민등록번호】	640505-1357441
【우편번호】	429-450
【주소】	경기도 시흥시 정왕동 1844 주공아파트 508동 305호
【국적】	KR
【발명자】	
【성명의 국문표기】	김민찬
【성명의 영문표기】	KIM, MIN CHAN
【주민등록번호】	651114-1953126
【우편번호】	690-012
【주소】	제주도 제주시 일도2동 113-6 일도우성아파트 204-502
【국적】	KR

【발명자】

【성명의 국문표기】

최병주

【성명의 영문표기】

CHOI, PYUNG JOO

【주민등록번호】

681001-1450911

【우편번호】

406-110

【주소】

인천광역시 연수구 연수동 연수2차 109동 401호

【국적】

KR

【발명자】

【성명의 국문표기】

신민철

【성명의 영문표기】

SIN, MIN CHUL

【주민등록번호】

750909-1221417

【우편번호】

138-170

【주소】

서울특별시 송파구 송파동 39-17(8/8)

【국적】

KR

【심사청구】

청구

【취지】

특허법 제42조의 규정에 의한 출원, 특허법 제60조의 규정에 의한 출원심사를 청구합니다. 대리인
정종욱 (인) 대리인
조담 (인)

【수수료】

【기본출원료】

20 면 29,000 원

【가산출원료】

10 면 10,000 원

【우선권주장료】

0 건 0 원

【심사청구료】

18 항 685,000 원

【합계】

724,000 원

【감면사유】

소기업 (70%감면)

【감면후 수수료】

217,200 원

【첨부서류】

1. 요약서·명세서(도면)_1통 2. 소기업임을 증명하는 서류[사업자등록증 및 원천징수이행상황신고서]_1통

【요약서】

【요약】

본 발명은 하기 화학식

$s[L]_x[P]_y[M]_z[N]_p[T]$ 의 조성을 갖는 강유전체 세라믹 화합물 및 그 제조방법과 강유전체 세라믹 단결정 및 그들의 제조방법에 관한 것으로, 본 발명에 따라 수득된 강유전체 세라믹과 그 단결정은 압전성이 크고 전기기계결합계수가 높으며 전기광학계수가 큰 완화형 강유전체로서, 무선통신용 가변소자, 광통신용 소자, 표면탄성파 소자나 F 바소자, 초음파 탐촉자 디바이스, 미세변위 제어용 액추에이터, 비휘발성메모리 소자, 소형 축전지 등의. 제조에 유용하며, 특히 본 발명에 따른 단결정 제조방법은 직경 5cm 이상의 단결정과 그의 조성이 매우 균일한 웨이퍼를 제조할 수 있어 상업적 응용과 대량 생산을 가능하게 한다.

상기 화학식에서, [P]는 산화납, [M]는 산화마그네슘 또는 산화아연, [N]은 산화나리오비움, [T]는 산화타이타늄이며, [L]은 리튬탄탈레이트 또는 리튬나리오베이트, 리튬, 리튬산화물, 백금, 인듐, 팔라듐, 로듐 니켈, 코발트, 철, 스트론튬, 스칸듐, 루세튬, 구리, 이트륨, 이터비움으로 이루어진 군 중에서 선택된 단일 물질이거나 그 혼합물이며, x, y, z, p 및 s는 각각 $0.55 < x < 0.60$, $0.09 < y < 0.20$, $0.09 < z < 0.20$, $0.01 < p < 0.27$, $0.01 < s < 0.1$ 을 만족하는 범위이다.

【대표도】

도 1b

【색인어】

강유전체, 세라믹, 화합물, 단결정

【명세서】**【발명의 명칭】**

강유전체 세라믹 화합물, 그 단결정 및 각각의 제조 방법 {Ferroelectric ceramic compound and single crystal material made therefrom and each manufacturing method thereof}

【도면의 간단한 설명】

도 1a는 본 발명에 따른 단결정을 만들기 위한 단결정 인곳(ingot)의 사진,

도 1b는 본 발명에 따른 단결정을 웨이퍼로 가공한 상태를 나타내는 사진,

도 1c는 본 발명에 따른 웨이퍼로 가공한 상태의 세라믹 화합물 단결정 덩어리의 외형을 도시한 도면,

도 1d는 도 1c에 도시된 단결정의 위치에 따른 구성 성분들의 균일도를 나타내는 그래프,

도 2는 본 발명에 따른 단결정을 제조하기 위해 사용되는 도가니의 외형을 나타낸 사진,

도 3은 본 발명에 따른 단결정을 이용하여 제작한 가변 소자의 패턴사진,

도 4는 본 발명에 따른 단결정을 이용하여 제작한 가변소자의 주파수 응답을 나타내는 그래프이다.

【발명의 상세한 설명】

【발명의 목적】

【발명이 속하는 기술분야 및 그 분야의 종래기술】

<8> 본 발명은 강유전체 세라믹 화합물 및 그 제조방법과 강유전체 세라믹 화합물로 제조되는 단결정 및 그 각각의 제조 방법에 관한 것으로, 보다 상세하게는 탁월한 강유전체 특성, 압전체 특성, 전기기계적 특성, 전기광학적 특성, 그리고 전왜성 등을 나타내어 광범위하게 응용되는 강유전체 세라믹 화합물과 그로부터 제조되는 직경 5cm 이상의 단결정 및 그들의 제조 방법에 관한 것이다.

<9> 단결정이란, 일반 세라믹 성분들이 분말로 존재하여 입자들이 경계를 가지고 무질서한 상태로 존재하는 것과 근본적으로 다르게, 경계가 없는 하나의 규칙적인 배열을 갖는 균질한 상태를 의미한다. 그리고 이러한 규칙적인 물리적 상태에 기인하여, 일반 세라믹스와는 완전히 다른 물리적, 전기기계적, 광학적, 전기광학적 특성을 제공하여 무선통신용 가변소자, 표면탄성파(surface acoustic wave)소자나 F바 소자, 광통신용 광변조기, 의료용 및 군사용 초음파 탐촉자, 비휘발성 메모리 소자, 미소변위제어용 액추에이터, 소형축전지, 복사에너지 수신기 등 많은 첨단 디바이스들이 단결정 소재를 사용하여 만들어진다.

<10> 이러한 단결정 중에서 특히 지능성 완화형 강유전체 특성을 가지고 있는 단결정은 지능성을 가지고 있어 센서로서 사용될 수 있으며, 단결정이 가지는 주어진 공간에서 가장 밀접된 원자 및 분자들의 질서 정연한 배열로 인하여 미세 가공이 가능하며, 입경이 존재하지 아니하여 높은 압전성, 전기기계적, 전기광학적 특성 등을 나타낸다. 본 발명

에서 완화형이란 용어는 대부분의 전기부품이나 소자, 재료, 기기 등이 지니고 있는 심각한 문제점인 외부온도에 의해 물리적 특성 값이 영향을 받는 온도 의존성을 완만하게 만드는 특성을 의미한다.

<11> 이러한 우수한 특성에 기인하여 완화형 지능성 강유전체 단결정은, 결정에 응력을 가했을 때 전압이 발생하는 압전성 및 이와 반대로, 전압을 가하면 일그러짐이 발생하는 전왜성을 이용하여, 초음파발생 소자, 액추에이터, 마이크로폰, 유무선 통신용 가변소자, 표면 탄성파(Surface acoustic wave: SAW) 소자, F 바 등에 사용될 수 있다. 또한 뛰어난 전기광학적 특성에 기인하여, 광통신용 기능성 소자인 광변조기, 광스위치 등에 유망한 소재이다. 그리고 최근 메모리 분야에서 관심이 집중되는 비휘발성 메모리 분야에서도 본 소재가 가지는 뛰어난 강유전 특성에 기인하여 우수한 특성의 메모리 소자가 만들어 질 수 있다.

<12> 그러나, 상기와 같이 뛰어난 특성을 가지고 있고 많은 첨단 디바이스로의 응용이 기대되는 단결정 소재는 일반적으로 상업적으로 응용 가능한 5cm(2인치) 크기 이상의 직경을 갖는 결정으로 만드는 것이 대단히 어려워 지금까지 상용화가 되지 못하고 있는 실정이다. 또한 단결정이 된다고 하여도 그 원료가 되는 세라믹 소재가 어떻게 만들어 졌고, 어떤 조성을 가지고 있느냐가 단결정의 품질과도 밀접한 관련을 가지고 있다. 이와 관련된 지금까지의 연구 보고를 살펴보면 아래와 같다.

<13> 새로운 완화형 강유전체 세라믹스 조성의 하나인 납 마그네슘 나이오베이트 [$\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$, 이하 PMN 이라한다]에 대해 최초로 1959년 러시아 과학자 스몰렌스키 (G. A. Smolenskii)와 아그레노프스카야(A. I. Agranovskaya)가 학회지[Sov. Phys. Solid State vol.1, 1429(1959)]에 보고한 바 있다. 이렇게 최초로 세라믹 조성이 보고

된 이후 보너(W.A.Bonner)와 위터트(L.G. Van Uitert)가 학회지[Mater. Res. Bull. Vol.2, 131(1967)]에 카이로플러스(Kyropoulos) 방법을 사용하여 수 mm에서 2 cm 이하 크기의 PMN 단결정을 성장시켜 보고하였다. 그리고 1980년에 와서, 세터(N. Setter)와 크로스(L. E. Cross)가 학회지[J. Cryst. Growth, Vol. 50, p 555(1980)]에 플릭스 방법을 사용하여 직경 1cm 크기의 PMN 단결정을 성장시켜 보고하였다. 또한, 이 물질이 갖는 여러 가지 특성과 그것의 PT 화합물인 PMN-PT 단결정에 관한 특성을 1983년 노무라(S. Nomura)와 우치노(K. Uchino)가 학회지[Ferroelectrics Vol. 50, p 107-203(1983)]에 보고하였다. 이 보고에 의하면, 상기 물질의 단결정은 압전특성, 전기기계적 특성, 강유전성, 초전성 등에서 탁월한 특성들을 가지고 있다고 기재하고 있다.

<14> 이후에도 지금까지 많은 연구결과들이 발표되고 있으나 최근 들어 이상구 등이 1999년 학회지[Appl. Phys. Letts. Vol. 74, No. 7, 1030(1999)]에 최초로 브리지만 방법을 이용하여 PMN의 1cm 급 단결정을 성장시키는데 성공하였고, 그 뛰어난 물리적 특성을 보고하였다. 그리고, 중국의 과학자 루오(Luo) 등이 보완된 브리지만 방법을 사용하여 직경 2.5 cm 급의 PMN-PT 단결정을 성장시켰고 그 물성을 IEEE 학회에서 발표[1999 IEEE Ultrasonic symposium-1009]하였다.

<15> 그러나, 앞에서 살펴본 종래의 PMN-PT의 조성과 그 조성을 사용한 단결정 제조 방법으로는 연구용이나 시험용으로 밖에 사용할 수 없는 직경 2.5 cm 급 이하 크기의 단결정 제조 방법만이 보고되거나 연구되었다. 이와 같은 크기로는 현재의 디바이스 제조 공정용으로 사용될 수 있는 최소한의 웨이퍼 크기인 직경 5cm에 훨씬 못 미치므로 상기 단결정 소재를 사용한 디바이스 개발이 이루어지지 않고 있는

실정이다. 그나마 지금까지 보고되어온 단결정 제조 방법 중에서 가장 재현성이 뛰어난 방법인 플렉스 성장 방법은 일정하지 않은 크기의 단결정이 얻어지므로 상업적 대량생산 방법으로는 사용하기 어려운 단점이 있었다.

<16> 지난 40 년간 완화형 강유전체 단결정에 대한 연구가 지속되었음에도 불구하고 여전히 상용화 디바이스에 적용되지 못하고 있는 가장 큰 이유는 납 성분을 다량 함유하고 있는 상기 강유전체 물질의 특성상 기존의 일반적인 단결정 성장방법으로는 직경 5cm 급 이상의 큰 결정을 안정적으로 생산하기가 불가능하였기 때문이다.

<17> 반면, 이러한 문제를 해결하기 위한 (주)아이블포토닉스의 한국특허 제0384442호, 미국특허 6,491,889 및 6,468,498가 개시된 바 있다. 그러나 이러한 방법도 상전이 온도가 낮아 한 개의 단결정 덩어리에서 성분 조성의 균일성이 떨어지고, 사용범위가 상대적으로 적은 문제점이 있었다.

【발명이 이루고자 하는 기술적 과제】

<18> 따라서, 본 발명은 상술한 종래 기술의 문제점을 극복하기 위하여 지금까지 보고된 종래의 화합물이 가지고 있는 전자기적, 광학적, 전기-광학적 특성값의 한계, 결정의 크기와 균일성의 문제, 낮은 상전이 온도와 같은 물리적인 특성값의 문제로 인해 상용화 범위가 낮은 한계 등을 극복하기 위해 안출된 것으로서, 그 특성값이 첨단 무선통신용, 초음파 탐측자용, 광통신용 초고속변조기, 미소변위 제어용 액추에이터, 비휘발성메모리 등의 디바이스 제조에 적합한 새로운 조성을 갖는 지능성 완화형 강유전체 단결정을 상업화가 가능한 5cm 이상의 결정 직경으로 제조하는데 그 목적을 두고 있다.

<19> 특히, 성분 조성의 균일성을 높이고, 사용범위를 확대하기 위하여 세라믹 제조 단계에서 L 반응단계라고 하는 고온 소성단계와, 이 반응 단계에서 온도 특성을 포함한 물성제어 등이 필요한 경우 첨가물을 넣는 단계를 포함하는 것으로 더욱 우수한 전기적, 물리적 특성을 갖는 세라믹 조성과 이를 사용한 균질의 단결정을 제조하는데 목적이 있다.

【발명의 구성 및 작용】

<20> 상기 목적을 달성하기 위해, 본 발명에 따라 하기 화학식 1의 구조를 가진 세라믹 화합물 및 그를 이용한 강유전체 단결정이 제공된다.

<21> 【화학식 1】



<22> 상기 식에서,

<23> [P]는 산화 납[PbO, PbO₂, Pb₃O₄]이고,

<24> [M]은 산화마그네슘[MgO]이며,

<25> [N]은 나이오비움 옥사이드[Nb₂O₅]

<26> [T]는 이산화 티탄[TiO₂]

<27> [L]은 리튬 탄탈레이트[LiTaO₃], 리튬 나이오베이트[LiNbO₃], 리튬 또는 리튬산화물[Li₂CO₃], 백금, 금, 은, 팔라듐, 로듐, 인듐, 니켈, 코발트, 철, 스트론튬, 스칸듐, 루세튬, 구리, 이트륨, 이터븀으로 이루어진 군 중에서 선택된 하나의 금속 또는 그의 산화물이고,

<28> x는 0.55 보다 크고 0.60 보다 작은 수이며,

- <29> y는 0.09보다 크고 0.20 보다 작은 수이고,
- <30> z는 0.09보다 크고 0.20 보다 작은 수이며,
- <31> p는 0.01보다 크고 0.27 보다 작은 수이며,
- <32> s는 0.01 보다 크고 0.1 보다 작은 수이다
- <33> 또한, 본 발명에 따라 상기 화학식 1의 지능성 완화형 강유전체세라믹 화합물과 그 단결정의 제조방법은,
- <34> 세라믹 전구체 반응단계[L 반응단계]로서,
- <35> 산화마그네슘[MgO] 또는 산화아연[ZnO]중 한 성분, 산화나이오비움 [Nb₂O₅] 및 이산화티탄 [TiO₂]을 각각 0.09 내지 0.20 몰, 0.09 내지 0.20 몰 및 0.01 내지 0.27 몰 범위의 양으로 혼합하고, 반응을 원활히 하거나 물성을 제어하기 위해 첨가제로서 리튬 탄탈레이트[LiTaO₃], 리튬 나이오베이트[LiNbO₃], 리튬 리튬카보네이트[Li₂CO₃], 백금(Pt), 금(Au), 은(Ag), 팔라듐(Pd), 로듐(Rh), 인듐(In), 니켈(Ni), 코발트(Co), 철(Fe), 스트론튬(Sr), 스칸듐(Sc), 루세튬(Ru), 구리(Cu), 이트륨(Y) 및 이터븀(Yb) 으로 이루어진 군 중에서 선택된 적어도 하나 이상의 금속 또는 그 산화물을 가한 후 섞어서 1100℃ 내지 2000℃ 사이의 온도에서 고온 반응 시키는 단계,
- <36> 다음으로 세라믹 화합물 반응단계로서,
- <37> 상기 반응을 통해서 수득된 화합물에, 산화납[PbO], 이산화납[PbO₂] 또는 삼산화이납[Pb₂O₃]등의 [Pb_xO_y]의 화학식을 갖는 산화납을 0.55내지 0.65몰을 건식 상태로 분쇄 혼합하거나 유기 용매를 사용한 분산 매질을 사용하여 혼합하고, 건조 시킨 후 800℃ 내지 1000℃ 사이에서 소성시킨 다음 분말로 분쇄하는 단계 및,

<38> 마지막 결정화 단계로서,

<39> 상기 단계에서 수득된 분말을 고온고압이 가능한 도가니에 주입한 후 도가니를 밀폐시키고 결정성장로에서 용융시킨 다음 서냉하여 결정화하는 단계를 포함하여 구성된다.

<40> 더욱이, 본 발명에 따라, 상기 세라믹 전구체 반응단계[L 반응단계]에서 반응을 원할히 하거나 물성을 제어하기 위해 [L]군 첨가제인 리튬탄탈레이트[LiTaO₃], 리튬나이오베이트[LiNbO₃], 리튬리튬카보네이트[Li₂CO₃], 백금(Pt), 금(Au), 은(Ag), 팔라듐(Pd) 및 로듐(Rh), 인듐(In), 니켈(Ni), 코발트(Co), 철(Fe), 스트론튬(Sr), 스칸듐(Sc), 루테튬(Ru), 구리(Cu) 및 이트륨(Y), 이터븀(Yb) 으로 이루어진 군 중에서 선택된 하나 또는 다수의 금속 및 그 산화물을 가하는 경우에는, 그 사용량은 완제품 PMNT 1몰에 대해서 0.01 내지 0.1몰의 범위인 것이 바람직하다.

<41> 이하에서 본 발명을 보다 상세히 설명한다.

<42> 본 발명에 따른 강유전체 단결정은 구성 성분들의 전구체 반응 단계인 [L]반응단계라고 명명하는 고온의 제1 고상 반응단계와, 완전한 세라믹 조성 반응단계인 제2 고상 반응단계, 그리고 그 생성된 세라믹 화합물의 용융결정화 단계를 통하여 제조되며, 이 과정을 거쳐 제조된 단결정은 균질한 화합물 조성을 갖는 새로운 물질이다. 본 발명에 따른 단결정은 지금까지 보고된 것보다 높은 전기기계 결합계수와 압전성을 나타내고, 투광도도 60%이상이 되며, 전기광학계수가 높을 뿐 아니라 단결정 덩어리와 각 부위별 웨이퍼에서의 조성의 균일성이 높아, 초음파 발생 디바이스, 무선통신용 소자, 광통신용 기능성소자인 광변조기, 비휘발성 메모리, 미소변위 제어용 액추에이터에 유용하게 사용할 수 있다.

<43> 본 발명에 따른 새로운 조성의 세라믹 화합물 파우더의 제조 과정을 구체적으로 살펴보면, 먼저, 발명의 핵심의 하나인 제 1 단계 L 반응(세라믹 전구체 반응단계)을 위하여 반응원료로서 [M] 군에서 산화마그네슘이나 산화아연 중에 한가지를 선정하고, [N] 군에서 산화나리오베이트 그리고 [T]로 나타나는 이산화티탄을 앞에서 설명한 적절한 물비로 섞어서 1100℃ 내지 2000℃ 까지의 고온 반응 단계를 가진다. 그리고 본 반응단계에서 반응을 원활히 하거나 물성을 제어하기 위해 [L]군 첨가제인, 타이타네이트 $[PbTiO_3]$, 리튬탄탈레이트 $[LiTaO_3]$ 또는 리튬나리오베이트 $[LiNbO_3]$, 리튬 또는 리튬카보네이트, 백금(Pt), 금(Au), 은(Ag), 팔라듐(Pd) 및 로듐(Rh), 인듐(In), 니켈(Ni), 코발트(Co), 철(Fe), 스트론튬(Sr), 스칸듐(Sc), 루테튬(Ru), 구리(Cu) 및 이트륨(Y), 이터비움(Yb) 으로 이루어진 군 중에서 선택된 하나 또는 다수의 금속 및 그 산화물을 가할 수 있으며, 그 사용량은 PMNT에 1몰 대해서 0.01 내지 0.1몰의 범위이다.

<44> 이어서, 생성 혼합물을 유기 용매를 분산 매질로 하거나 건식으로 분쇄하여 혼합한 후 건조 및 소성시킨다. 유기용매로는 에틸알콜, 이소프로필알콜 등과 같은 용매를 사용할 수 있다. 건조는 통상의 방법에 따라, 즉 건조기를 이용하여 예를 들면 150℃ 내지 200℃ 범위의 온도에서 수행할 수 있고, 소성은 예를 들면 1100℃ 내지 2000℃의 온도 범위로 1시간 내지 10시간 동안 수행할 수 있다.

<45> 상기와 같이 하여 얻어진 물질에 [P]의 조성인 산화납 $[Pb_xO_y]$ 중에서 한가지 선택하여 혼합한 후 전술한 방법대로 분쇄 혼합한 후 건조 및 소성시킨다. 여기서 2단계 반응을 위한 소성 시에는 사용온도를 예를 들면 800℃ 내지 1000℃의 온도 범위로 1시간 내지 10시간 동안 수행할 수 있다. 이렇게 하여 얻어진 새로운 조성의 세라믹 분말은 우

수한 온도적, 조성의 균일한 특성을 가지는 새로운 강유전체 조성의 세라믹 화합물로서 얻어진다.

<46> 이러한 우수한 강유전 특성을 가지는 새로운 세라믹 화합물을 사용하여 더욱 균질하고, 더욱 뛰어난 특성을 가지고 여러 가지 응용할 수 있는 단결정을 만들기 위하여 이어서 마지막 단계인 용융결정화 공정을 수행한다.

<47> 용융결정화 단계에서는, 이미 1반응을 포함한 2차의 고상반응을 거친 세라믹 화합물을 도 2에 나타낸 바와 같은 직경을 5cm 이상으로 하는 백금 도가니 또는 백금-로듐합금 도가니 또는 이리듐 도가니, 지르코늄, 세라믹 도가니에서 고온고압상태로 용융시킨 다음 서냉하여 결정화시킨다. 용융은 1,200℃ 내지 1,500℃ 범위의 고온과 10psi 내지 1000psi 의 밀폐 고압 도가니에서 수행하며, 360 내지 500시간 동안 고온을 유지한 후 약 80 내지 100시간 동안 서서히 실온으로 냉각시킴으로써 수행한다. 이 단계에 의해, 원자나 분자 수준 및 물질의 격자구조까지도 균질하게 형성되어 세라믹 조성 반응단계 후의 세라믹 화합물일 때와는 물리 화학적으로 전혀 또 다른 특성을 나타내는 균질한 조성의 단결정을 수득할 수 있다. 또한 상술한 도가니의 직경을 자유로이 키울 수 있어 얼마든지 큰 직경을 가진 일정한 원주 형태의 단결정을 만들 수 있다. 대체로 단결정의 직경은 30cm 까지 가능하며, 다만 직경을 크게하는 경우 내부 온도, 조성의 균일성을 좋게 하기 위하여 도가니에 회전을 가하거나 특별한 냉각 장치를 사용하는 것이 바람직하다.

<48> 한편, 현재 강유전체 방식으로 사용되는 물질로 대표되는 것은 바륨스트론튬 타이타네이트(BST)와 스트론튬타이타네이트(STO) 등이 있으나, 단결정형태의 재료제작이 어려워 박막으로 제작하고 있다. 이들 물질의 장점은 유전손실이 적고 높은 주파수(수십 GHz)에서도 유전율의 비선형성을 가진다는 것이다. 하지만 박막의 제작공정에 따라 물성

이 크게 변화하며, 충분한 캐패시턴스의 변화율을 얻기 위해 높은 전계를 가해야 한다는 단점이 있다. 본 발명에 따라 단결정 형태로 소재를 제조할 경우 물성이 안정적으로 유지되며, BST에 비해 높은 유전율을 가지며 낮은 전계에서도 큰 캐패시턴스 변화율을 보이는 장점이 있다.

<49> 이하, 본 발명을 보다 상세히 설명하기 위하여 실시예를 들어 기술할 것이나, 이하에서 예시될 실시예가 본 발명을 한정하는 것은 아니다.

<50> 실시예 : 강유전체 세라믹 화합물과 그 단결정의 제조

<51> 하기 표 1의 본 발명에 따른 강유전체 단결정의 구성성분에 나타낸 바와 같은 L 반응단계의 반응원료를 계량, 혼합한 다음, 0.5" 지르코니아 불밀에서 에탄올을 분산 매질로 하여 분쇄 혼합하였다. 이어서, 생성 혼합물을 150℃의 온도로 제어된 전기로에서 건조시키고, 뚜껑이 있는 알루미나 도가니에서 1600℃의 온도로 6시간 동안 소성시켜 1차 반응을 완결하였다. 이렇게 얻어진 소성된 물질을 다시 불 분쇄기로 균일하게 분쇄하였다. 이렇게 얻어진 1차 반응물에 [P] 조성 단계를 거치며 뚜껑이 있는 알루미나 도가니에서 920℃의 온도로 4시간 동안 소성시켜 2차 반응을 완결하였다.

<52> 상기 세라믹 분말을 백금 도가니에 넣고 밀봉한 다음 고온 결정 성장로 (1,500℃, 100 psi)에 20시간동안 두어 완전히 용융시킨 후, 360 시간동안에 걸쳐 1,500℃를 유지한 후 서서히 20℃로 냉각시켜, 투명하고 균질한 조성의 결정을 수득하였으며, 그 결정을 웨이퍼로 가공하여 도 1b에 나타난 바와 같은 웨이퍼를 얻을 수 있었다. 도 1c의 웨이퍼 상의 각 위치에 대한 웨이퍼의 균일도를 도 1d의 그래프에 도시하였다.

<53> 【표 1】

본 발명에 따른 강유전체 단결정의 구성성분

본 발명에 따른 강유전체 단결정의 구성성분

반응원료		[L]반응단계(1단계반응)					조성식
		x[P] 0.55<x<0.65 x: mol x+y+z+p=1	y[M] 0.12<y<0.20 y: mol	z[N] 0.12<z<0.20 z: mol	p[T] 0.01<p<0.20 p: mol	s[L] 0.01<L<0.1 n: mol/mol= s/(x+y+z+p)	
		[P]: Pb ₂ O ₃ 또는 PbO	[M]: MgO 또는 ZnO	[C]: Nb ₂ O ₅	[P]: TiO ₂	[N]: NiO LiTaO ₃ LiNbO ₃ Li ₂ CO ₃ Pt Ag Au Pd Rh, InO Co Fe ₂ O ₃ ScO SrO RuO ₂ CuO YbO, Yb ₂ CO ₃	s[L]- x[P]y[M]z[N]p[T]
실시예	1	PbO 0.564몰	MgO 0.127몰	0.127몰	0.180몰	0.01mol%Pt +0.03Li ₂ CO ₃	L-PMNT
	2	PbO 0.564몰	MgO 0.127몰	0.127몰	0.180몰	0.01mol%Pt + 0.03InO	I-PMNT
	3	PbO 0.564몰	MgO 0.127몰	0.127몰	0.180몰	0.01mol%Pt + 0.03Y	Y-PMNT
	4	PbO 0.564몰	MgO 0.127몰	0.127몰	0.180몰	0.01mol%Pt + 0.03Yb	Yb-PMNT
L-PMNT: 0.01[Pt]0.03[Li ₂ CO ₃]-0.56[PbO]0.13[PbTiO ₃]0.13[PbTiO ₃]0.18[PbTiO ₃] I-PMNT: 0.01[Pt]0.03[InO]-0.56[PbO]0.13[PbTiO ₃]0.13[PbTiO ₃]0.18[PbTiO ₃] Y-PMNT: 0.01[Pt]0.03[YbO]-0.56[PbO]0.13[PbTiO ₃]0.13[PbTiO ₃]0.18[PbTiO ₃] Yb-PMNT: 0.01[Pt]0.03[Yb ₂ CO ₃]-0.56[PbO]0.13[PbTiO ₃]0.13[PbTiO ₃]0.18[PbTiO ₃]							

<54> 실험1 : 의료용 초음파 진단기 제작을 위한 전기기계적, 압전성 성능 시험

<55> 상기 실시예에서 수득한 단결정을 사용한 음파 진단기를 위한 탐촉자 제조를 위해 필요한 특성을 측정하기 위하여, 상기 단결정의 양면을 0.5 mm 두께로 연마하고 초음파

세척기로 세척한 후, 양면에 DC 마그네트론 스퍼터(magnetron sputter)(Model KVSC T5050, 한국진공과학(Korea Vacuum Science))를 이용하여 15×6 mm의 크롬 전극을 형성하였다.

<56> HP 4192A LF 임피던스 분석기(미국의 휴렛 팩커드사(Hewlett-Packard Co.)제품)를 이용하여 1kHz, 0.5Vrms에서 측정한 캐패시턴스(capacitance)와 산만도(dissipation)를 이용하여, 상기 단결정의 유전상수와 유전손실을 계산하였다. 또한, 압전특성으로서, 상기 단결정에 4kV/cm의 전계를 120℃에서 30분 인가하여 분극처리 한 후, 공진, 반공진 법을 이용하여 분극 방향 진동모드의 전기기계 결합계수 (k_{33})와 압전 전하계수(d_{33})를 계산하였다. 상기 전기기계 결합계수는 압전체에 전기장을 인가할 때, 전기에너지가 기계적 에너지로 변화되는 효율을 의미하며, 분극 방향 진동모드의 압전 전하계수(d_{33})는 축방향으로 일정한 압축 또는 인장응력이 가해졌을 때 축방향에서 발생하는 전하량(D_3)의 척도이다.

<57> 상기 단결정 및 종래 물질들의 유전 상수와 손실 압전 상수, 및 전기기계 결합계수 특성값들을 비교하여 하기 표 2에 나타내었다.

<58> 【표 2】

	PZT-5A	PZT-5H	PMN-PT 단결정	PZN-PT 단결정	L-PMNT 단결정 (실시예 1)
유전상수	1700	3400	5500	5000	7000
손실압전상수	0.02	0.02	0.006	0.014	0.005
d_{33} (pC/N)	374	593	2200	2000	2500
d_{31} (pC/N)	200				1000
d_{15} (pC/N)	300				7000
k_{33}	0.705	0.75	0.92	0.91	0.95
상전이온도			145℃	150℃	190℃

<59> 상기 표 2와 같이, 본 발명은 실온 유전 상수값이 6000 내지 15000 범위를 갖는 강 유전체 세라믹 단결정을 제조할 수 있다.

<60> 실험2 : 무선 통신용 가변 소자 제작을 위한 가변 캐패시터 소자 제작 및 시험

<61> 캐패시터는 동일 평면(coplanar) 모양과 IDC(interdigital capacitor) 두 가지 방식을 사용하였다. 도 3에 나타난 바와 같은 본 발명에 따른 단결정 기판 위에 제작된 IDC 구조는 전극 간격을 줄여 큰 전계를 가할 수 있으면 정전용량(capacitance)을 크게 할 수 있는 장점이 있으나, 복잡한 등가회로로 모델링 되는 단점을 가지고 있다. 먼저, 실시예에서 제조된 압전 단결정을 사용한 기판의 표면을 유기질 제거용으로 널리 사용되는 DECONEX 5%와 탈 이온수 95%로 구성된 용액에서 40℃에서 20분간 초음파 세척을 하고 린싱한 후에 반도체 표면 세정 공정을 거쳐 세정하였다.

<62> 상기와 같이 세정된 단결정 표면에, 스퍼터링(sputtering)법에 의해 알루미늄 합금 (Al-0.5%Cu)을 1000 옴스트롱 이상의 두께로 증착하여 캐패시터를 제조하였다. 설계상의 정확한 치수로 전극을 구현하기 위해 리프트오프(lift-off) 식각방식을 이용하였다. 사용한 Au 전극의 두께는 침투하는 전자기파의 진폭(amplitude)이 2% 미만으로 감소하는 두께로 결정한다. Au 전극이 상기 기판에 좋은 접착성을 가지게 하기 위하여 Ti 금속막을 미리 입혔다. 상기 압전 단결정 기판위에 반도체 공정을 통해 패턴화하여 형성하였다. 즉, 감광제를 약 1 μm 두께로 스핀 코터를 사용하여 알루미늄 박막 위에 도포한 다음 포토 마스크를 덮고 감광제를 자외선(UV)에 노광시킨 다음, 현상 작업을 수행하여 포토 마스크와 동일한 감광제 패턴이 알루미늄 박막위에 형성되도록 하고, 그 후

인산 질산 초산 과 증류수로 혼합된 알루미늄 식각 용액을 이용한 습식 식각법에 의해 감광제가 도포되지 않은 부분의 알루미늄 합금 박막을 제거하여 알루미늄 박막의 패턴이 형성되도록 한 다음, 마지막으로 감광제 제거 용액 PR remover를 사용하여 감광제를 제거하여 본 발명의 캐패시터를 제조하였다.

<63> 도 3은 상기 실시예에 따른 압전 단결정을 사용한 캐패시터의 패턴사진을 나타낸다. 도 3에 나타낸 본 발명에 따라 제작된 캐패시터를 40GHz 까지 인가 전계에 따라 캐패시턴스의 변화를 측정하였다. 주파수에 따른 캐패시턴스의 변화를 도 4에 도시하였다. 인가 전계는 0 볼트에서 -40볼트까지이며 본 발명에서 제작된 IDC 중에서 캐패시턴스의 변화율이 최대 40%로 측정되었다. 그러나 본 발명의 소재를 가지고 후막이나 박막의 형태로 가변소자를 제작하여 막의 위아래로 전계를 가하는 구조를 채택하면 낮은 인가 전압으로도 더 큰 캐패시턴스 변화율(tunability)을 얻을 수 있었다.

<64> 실험3 : 광변조기 제작을 위한 전기광학적 성능 시험

<65> 실시예에서 얻은 단결정에 외부 전기장을 가해줄 때 광학적 성질이 바뀌는 현상을 측정하여(즉, 1차 전기광학계수를 얻음으로써, 시험방법: Fernando Agullo-Lopez, Jose Manuel Cabrera, Fernando Agullo-Rueda, Electrooptics, pp49 Academic Press, 1994) 상기 단결정을 광변조기 제작용 기판으로 사용가능성을 확인하였다.

<66> 기판이 조성에 따라 약간의 변화는 있으나, 대략 그 값은 50 내지 500pm/v 값을 얻어 기존의 재료들인 리튬나이오베이트(LN)이나 리튬탄탈레이트(LT)에서 얻을 수 있는 30-50nm/v 값의 10배 가량이 됨을 확인하였다.

<67> 실험4 : 마이크로 액추에이터 제어용 변위시험

<68> 본 발명에서 얻어진 단결정의 d_{33} , d_{31} , d_{15} 값이 각각, 2000 ~ 4000[pm/V], -600 ~ -1200[pm/V], 그리고 5000 ~ 8000 [pm/V] 이므로 이를 통해 변위가 기존의 소재인 PZT에 비해 10배인 변위를 얻을 수 있었다.

<69> 실험5 : 비휘발성 메모리 저장장치를 위한 박막제조 시험

<70> 본 발명에서 얻어진 단결정이나 세라믹화합물을 타겟으로 사용하여 비휘발성 메모리 저장장치 소자를 제작하기 위하여 실리콘 기판이나 강유전체 단결정 기판에 단결정성 강유전막을, 실리콘 기판 또는 축이 어긋난 강유전체 단결정 기판 위에 일상적인 방법으로 하부전극을 올리고, 그 위에 PLD(pulsed laser deposition)법이나 증착법(MOCVD, Sputter)에 의해 강유전성 단결정을 증착함으로 단결정성 막을 형성하였다. 이렇게 얻어진 막의 $10\mu\text{m} \times 0\mu\text{m}$ 영역에 10V를 하부전극에 가하면서 폴링시킨후 그 안의 $5\mu\text{m} \times 5\mu\text{m}$ 영역에 -10V를 하부전극에 가하면서 폴링시켰다. 그 후에 $15\mu\text{m} \times 6\mu\text{m}$ 영역을 스캔하면서 -10V와 10V 로 각각 폴링시킨 곳의 콘트라스트(Contrast)가 5V 이상 나는 결과를 얻을 수 있어서, 본 소재와 방법으로 우수한 비휘발성 메모리 소자 제작이 가능함을 알 수 있었다.

【발명의 효과】

<71> 본 발명에 따라 제조된 새로운 지능성 강유전체 단결정은 높은 전기 기계 결합계수와 압전성을 나타내고, 투광도도 60%이상이 되며, 단일 결정 덩어리 전체에서 얻어진 웨

이퍼 들의 조성이 탁월히 균질하며, 특히 사용범위를 결정하는 상전이 온도가 기존보다 25%이상 상승하는 우수한 특성을 나타내며, 전기광학계수가 높으므로, 초음파 발생 디바이스, 무선통신용 소자, 광통신용 기능성소자, 미소변위제어용 액추에이터, 압전 펌프 제조, 메모리 소자에 효과적으로 사용할 수 있다.

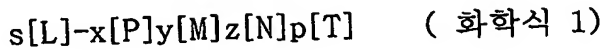
<72> 한편, 본 발명에 따른 단결정 형태로 소재를 제조할 경우, 물성이 안정적으로 유지되며, BST에 비해 높은 유전율을 가지며 낮은 전계에서도 큰 캐패시턴스 변화율을 보이는 장점이 있다.

<73> 이상과 같이 본 발명을 바람직한 실시예에 따라 도면을 참조하여 설명하였으나, 본 발명은 실시예에 의해 설명되고 도면으로 도시된 구성 및 작용으로 한정되는 것이 아니다. 오히려 첨부된 특허청구범위의 사상 및 범주를 일탈함이 없이 본 발명에 대한 다수의 변경 및 수정이 가능함을 당업자들은 잘 이해할 수 있을 것이다. 따라서, 그러한 모든 적절한 변경 및 수정과 균등물들도 본 발명의 범위에 속하는 것으로 간주되어야 할 것이다.

【특허청구범위】

【청구항 1】

하기 화학식 1의 조성을 갖는 강유전체 세라믹 화합물.



상기 식에서,

[P] 는 산화 납[PbO, PbO₂, Pb₃O₄]이고,

[M]은 산화마그네슘[MgO]이고,

[N] 은 나이오비움 옥사이드[Nb₂O₅]이고,

[T]는 산화 티탄[TiO₂]이고,

[L] 은 리튬 탄탈레이트[LiTaO₃], 리튬 나이오베이트[LiNbO₃], 리튬 또는 리튬산화물[Li₂CO₃], 백금, 금, 은, 팔라듐, 로듐, 인듐, 니켈, 코발트, 철, 스트론튬, 스칸듐, 루세튬, 구리, 이트륨, 이터븀으로 이루어진 군 중에서 선택된 하나의 금속 또는 그의 산화물이고,

x는 0.55 보다 크고 0.60 보다 작은 수이고,

y 는 0.09 보다 크고 0.20 보다 작은 수이고,

z는 0.09 보다 크고 0.20 보다 작은 수이고,

상기 p는 0.01 보다 크고 0.27 보다 작은 수이고,

s는 0.01 보다 크고 0.1 보다 작은 수이다.

【청구항 2】

제 1 항에 따른 강유전체 세라믹 화합물로부터 제조되는 강유전체 단결정.

【청구항 3】

제 2 항에 있어서,

상기 단결정의 직경이 5cm 내지 30cm인 것을 특징으로 하는 강유전체 세라믹 단결정.

【청구항 4】

제 2 항 또는 제 3 항에 있어서,

상기 단결정의 실온 유전 상수가 6000 내지 15000인 것을 특징으로 하는 강유전체 세라믹 단결정.

【청구항 5】

산화마그네슘[MgO] 또는 산화아연[ZnO]중 한 성분, 산화나이오비움 [Nb₂O₅] 및 이산화티탄[TiO₂]을 각각 0.09 내지 0.20 몰, 0.09 내지 0.20 몰 및 0.01 내지 0.27 몰 범위의 양으로 혼합하는 제1단계;

상기 제1단계에서 생성된 혼합물의 반응을 원활히 하거나 물성을 제어하기 위해 첨가제를 가한 후 고온 반응시키는 제2단계;

상기 제2단계에서 수득된 화합물에, [Pb_xO_y]의 화학식을 갖는 산화납 중에서 선택된 한가지를 0.55 내지 0.65몰 혼합하고, 건조시킨 후 소성시킨 다음 분말로 분쇄하는 제3단계를 포함하여 이루어지는 것을 특징으로 하는 제1항에 따른 강유전체 세라믹 화합물의 제조 방법.

【청구항 6】

제5항에 있어서,

상기 제2단계에서 가해지는 상기 첨가제는, 리튬탄탈레이트[LiTaO₃], 리튬나이오베이트[LiNbO₃], 리튬카보네이트[Li₂CO₃], 백금(Pt), 금(Au), 은(Ag), 팔라듐(Pd), 로듐(Rh), 인듐(In), 니켈(Ni), 코발트(Co), 철(Fe), 스트론튬(Sr), 스칸듐(Sc), 루테튬(Ru), 구리(Cu), 이트륨(Y) 및 이터븀(Yb)으로 이루어진 군 중에서 선택된 적어도 하나 이상의 금속 또는 그 산화물인 것을 특징으로 하는 강유전체 세라믹 화합물의 제조 방법.

【청구항 7】

제5항 또는 제6항에 있어서,

상기 제2단계에서의 고온반응은, 1100℃ 내지 2000℃ 사이의 온도에서 이루어지는 것을 특징으로 하는 강유전체 세라믹 화합물의 제조 방법.

【청구항 8】

제5항 또는 제6항에 있어서,

상기 제3단계의 혼합은, 건식상태로 분쇄 혼합하거나 유기용매를 사용한 분산 매질을 사용하여 혼합하는 것을 특징으로 하는 강유전체 세라믹 화합물의 제조 방법.

【청구항 9】

제5항 또는 제6항에 있어서,

상기 제3단계의 소성은, 800℃ 내지 1000℃ 사이에서 행하여지는 것을 특징으로 하는 강유전체 세라믹 화합물의 제조 방법.

【청구항 10】

산화마그네슘[MgO] 또는 산화아연[ZnO]중 한 성분, 산화나이오비움[Nb₂O₅] 및 이산화티탄[TiO₂]을 각각 0.09 내지 0.20 몰, 0.09 내지 0.20 몰 및 0.01 내지 0.27 몰 범위의 양으로 혼합하는 제1단계;

상기 제1단계에서 생성된 혼합물의 반응을 원할히 하거나 물성을 제어하기 위해 첨가제를 가한 후 고온 반응시키는 제2단계;

상기 제2단계에서 수득된 화합물에, [Pb_xO_y]의 화학식을 갖는 산화납 중에서 선택된 한가지를 0.55 내지 0.65몰 혼합하고, 건조시킨 후 소성시킨 다음 분말로 분쇄하는 제3단계;

상기 제3단계에서 수득된 분말을 고온 고압 하에서 용융시킨 다음 서냉하여 결정화하는 제4단계를 포함하여 이루어지는 것을 특징으로 하는 단결정 제조 방법.

【청구항 11】

제10항에 있어서,

상기 제2단계에서 가해지는 상기 첨가제는, 리튬탄탈레이트[LiTaO₃], 리튬나이오베이트[LiNbO₃], 리튬카보네이트[Li₂CO₃], 백금(Pt), 금(Au), 은(Ag), 팔라듐(Pd), 로듐(Rh), 인듐(In), 니켈(Ni), 코발트(Co), 철(Fe), 스트론튬(Sr), 스칸듐(Sc), 루테튬(Lu), 구리(Cu), 이트륨(Y) 및 이터비움(Yb)으로 이루어진 군 중에서 선택된 적어도 하나 이상의 금속 또는 그 산화물인 것을 특징으로 하는 단결정 제조 방법.

【청구항 12】

제10항 또는 제11항에 있어서,

상기 제2단계에서의 고온반응은, 1100℃ 내지 2000℃ 사이의 온도에서 이루어지는 것을 특징으로 하는 단결정 제조 방법.

【청구항 13】

제10항 또는 제11항에 있어서,

상기 제3단계의 혼합은, 건식상태로 분쇄 혼합하거나 유기용매를 사용한 분산 매질을 사용하여 혼합하는 것을 특징으로 하는 단결정 제조 방법.

【청구항 14】

제10항 또는 제11항에 있어서,

상기 제3단계의 소성은, 800℃ 내지 1000℃ 사이에서 행하여지는 것을 특징으로 하는 단결정 제조 방법.

【청구항 15】

제10항에 있어서,

상기 제4단계의 고온 고압 하에서의 용융은, 상기 제3단계에서 수득된 분말을 고온 고압하의 도가니에 주입한 후 도가니를 밀폐시키고 용융시키는 것을 특징으로 하는 단결정 제조방법.

【청구항 16】

제10항에 있어서,

상기 제4단계는, 상기 제3단계에서 수득된 분말을 고온 고압이 가능한 도가니에 주입한 후 도가니를 밀폐시키고 1200℃ 내지 1500℃의 온도와 20 내지 1000 psi의 압력 하

에 용융시킨 다음 360 내지 500시간 동안 온도를 유지한 후 서서히 실온으로 냉각시키는 것을 특징으로 하는 단결정 제조방법.

【청구항 17】

제15항 또는 제16항에 있어서,

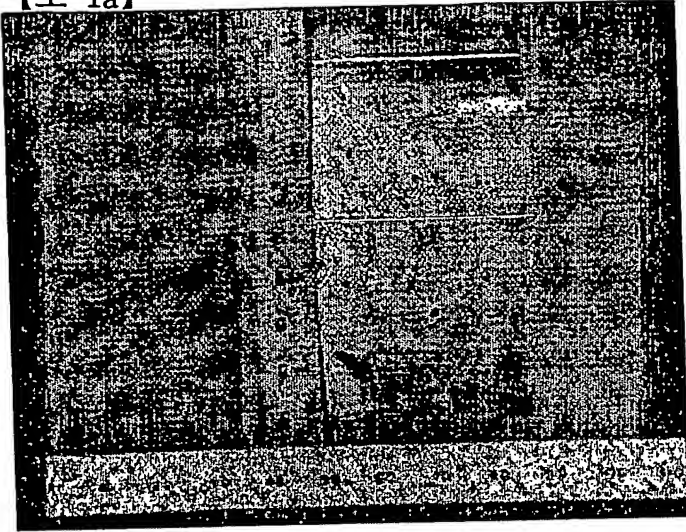
상기 도가니는 백금 또는 백금-로듐 합금 또는 이리듐 소재의 도가니인 것을 특징으로 하는 단결정 제조방법.

【청구항 18】

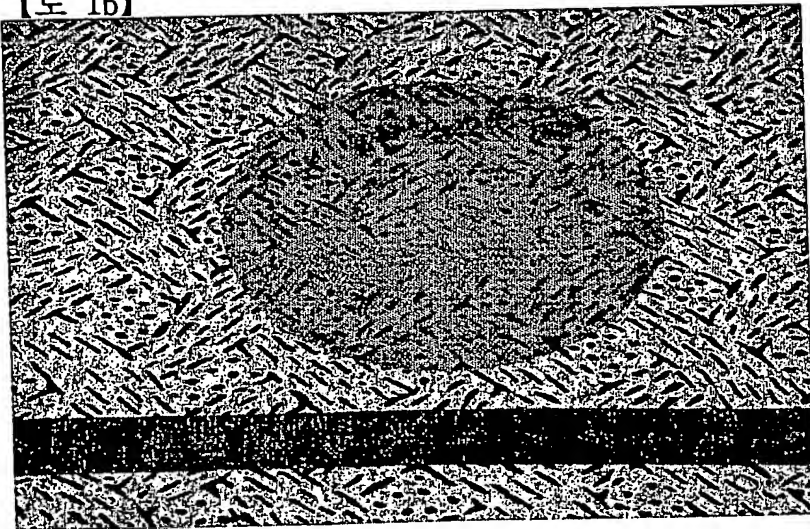
제17항에 있어서, 상기 도가니는 내부 직경이 5cm 내지 30cm 인 것을 특징으로 하는 단결정 제조방법.

【도면】

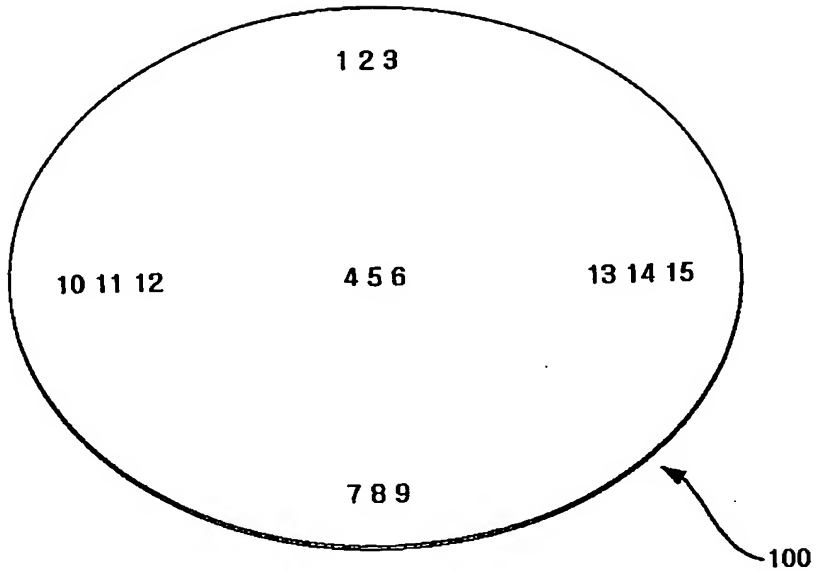
【도 1a】



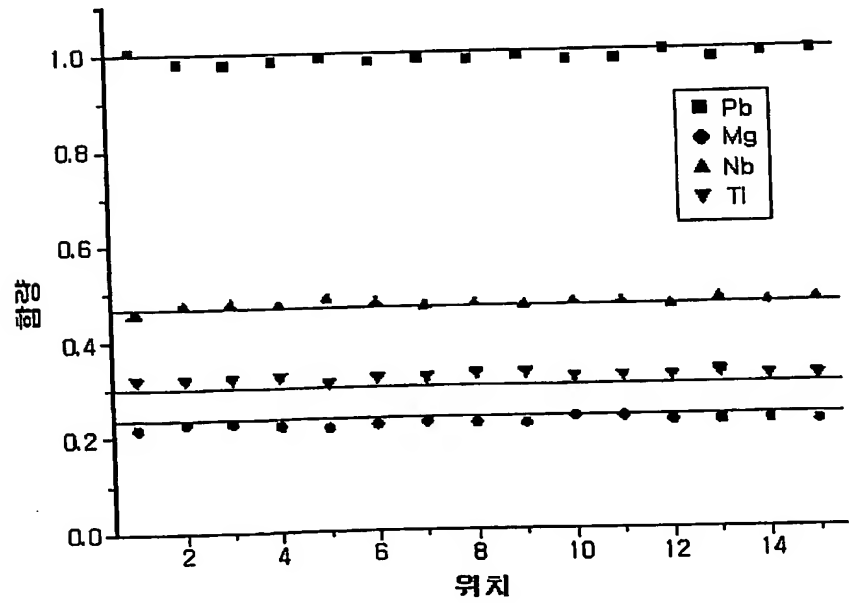
【도 1b】



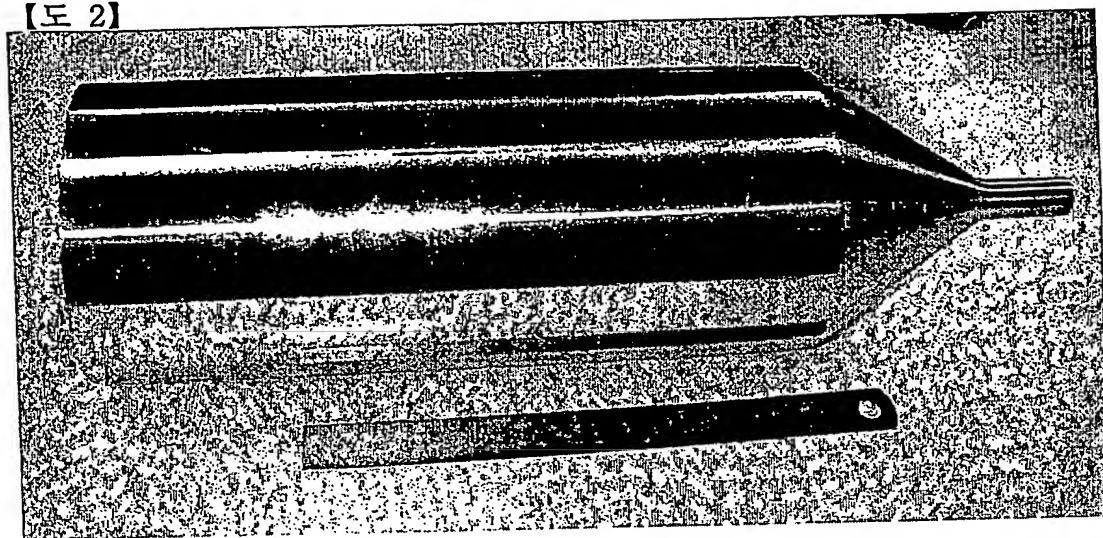
【도 1c】



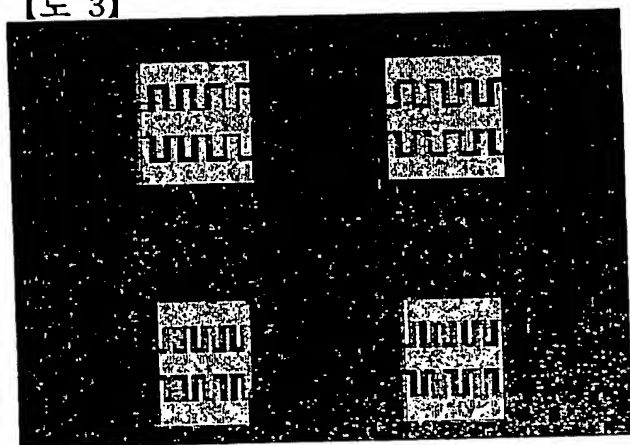
【도 1d】



【도 2】



【도 3】



【도 4】

